

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2001年2月15日 (15.02.2001)

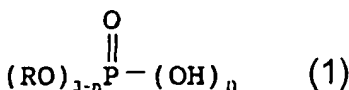
PCT

(10) 国際公開番号
WO 01/10958 A1

- (51) 国際特許分類⁷: C09C 1/02, 3/08, C01F 5/02, C08K 9/04, C08L 101/00, H01B 3/00, 3/30, H01L 23/29 (ANABUKI, Hitoshi) [JP/JP]; 〒762-0012 香川県坂出市林田町4285 協和化学工業株式会社 研究開発部内 Kagawa (JP).
- (21) 国際出願番号: PCT/JP00/05147
- (22) 国際出願日: 2000年7月31日 (31.07.2000) (74) 代理人: 大島正孝(OHSHIMA, Masataka); 〒160-0004 東京都新宿区四谷四丁目3番地 福屋ビル 大島特許事務所 Tokyo (JP).
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語 (81) 指定国 (国内): AU, CA, CN, ID, KR, NO, SG, US.
- (30) 優先権データ: 特願平11/224157 1999年8月6日 (06.08.1999) JP (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 協和化学工業株式会社 (KYOWA CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) [JP/JP]; 〒761-0113 香川県高松市屋島西町305 Kagawa (JP).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- (72) 発明者; および
(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 穴吹 仁
- 2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: HIGHLY ACID-RESISTANT, HYDRATION-RESISTANT MAGNESIUM OXIDE PARTICLES AND RESIN COMPOSITIONS

(54) 発明の名称: 高耐酸性および高耐水和性の酸化マグネシウム粒子および樹脂組成物



materials of electronic or electrical components.

(57) Abstract: Magnesium oxide particles whose surfaces are treated with an acid phosphate ester represented by the general formula (1) and which exhibit high acid resistance and high hydration resistance; and synthetic resin compositions containing the magnesium oxide particles (wherein n is 1 or 2; and R is C₄-C₃₀ alkyl or C₄-C₃₀ alkenyl). The resin compositions permit high magnesium oxide contents and are excellent in fluidity and easy of molding. Articles molded from the compositions have high acid resistance and high hydration resistance, thus being valuable as

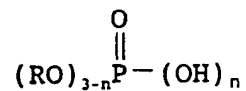
[続葉有]

WO 01/10958 A1



(57) 要約:

下記式



(式中、nは1または2、RはC₄～C₃₀のアルキル基またはC₄～C₃₀のアルケニル基を示す、)

で表される酸性リン酸エステルで表面処理された高耐酸性および高耐水和性の酸化マグネシウム粒子並びにこの酸化マグネシウム粒子を配合した合成樹脂組成物。

本発明の樹脂組成物は、酸化マグネシウムを高い充填率で配合することができ、その流動性がよく成形加工が容易である。また得られた成形品は、高耐酸性および高耐水和性を有しているので電子部品や電気部品の材料として優れた価値を有している。

明 細 書

高耐酸性および高耐水和性の酸化マグネシウム粒子および樹脂組成物

5 発明の詳細な説明

発明の属する技術分野

本発明は高耐酸性および高耐水和性の酸化マグネシウム粒子および樹脂組成物に関する。

- さらに詳しくは、本発明は高融点（約2,800℃）、高電気絶縁性、低誘電体
10 損失、高透光性、高熱伝導性、無毒性、塩基性等の酸化マグネシウム本来の物性に、さらに高耐酸性、高耐水和性および高流動性を付加し、樹脂の熱伝導性改良剤、耐熱材料、電気絶縁材料、封止材、シーズヒーター充填剤、光学材料、研磨材等に有用な酸化マグネシウム粒子に関する。また本発明は、この酸化マグネシウム粒子を含有する樹脂組成物にも関する。

15 従来の技術

- 酸化マグネシウム粒子は軽焼成酸化マグネシウム（約600～900℃）と死
焼成酸化マグネシウム（約1,100～1,500℃）とに分類される。前者は
酸物質の中和およびハロゲンの中和に対する優れた化学的活性を利用するもので
あり、その代表的な用途としては例えばクロロプレン、クロロスルホン化ポリエ
20 チレン等のハロゲン化ゴムの受酸剤がある。後者は酸化マグネシウム粒子の優れた物理的性質、すなわち高融点（約2,800℃）、高温における高電気絶縁性、広い波長域に亙る透光性および高熱伝導性を利用した耐熱容器、耐熱部品、断熱材、IC基板、レンズ、ナトリウムランプ容器、シーズヒーター、樹脂等の充填材、研磨材等に用いられる。しかし酸化マグネシウム粒子は水または水蒸気によ
25 り徐々に侵されて水酸化マグネシウム粒子に変化（水和）し、上記した種々の優れた物理的性質が失われるという問題点があり、その利用範囲を狭めている。

この問題点を改良するため、特開昭61-85474号公報は、1,600℃以上熔融温度（2,800℃）未満で焼成する方法を提案している。しかし1,

600℃以上酸化マグネシウム粒子の熔融温度未満で焼成する方法では、焼成温度の割には酸化マグネシウム粒子の結晶成長が悪く、しかも焼成により大きな塊となり、強度の粉碎を必要とするため、せっかく成長した酸化マグネシウム粒子の単結晶が破壊され、結晶表面に種々の格子欠陥を生ずる。このため、満足できる耐水和性を示さず、同時に外形が不定形となり、流動性も悪く、樹脂への高充填を困難ならしめるという問題があった。

また特開昭61-36119号公報は、水溶性マグネシウム塩を含む水溶液に、マグネシウム1当量に対し1~3.5当量のアンモニアを水酸化マグネシウムの種の存在下に反応させ、平均2次粒子径5~500 μ mの見掛上球形の凝集体からなる水酸化マグネシウムを合成し、これを1,200~2,000℃で焼成する方法を提案している。

この提案方法において、水溶性マグネシウム塩水溶液と所定量のアンモニアを水酸化マグネシウム粒子の種の存在下に反応させ、ついで、1,200~2,000℃で焼成する方法により得られた酸化マグネシウム粒子は、流動性と樹脂への充填性は、粉末品に比して改良されている。なお、粉末品とは、機械的粉碎で得られる平均粒子径約10~20 μ m以下の外形が不定形である粗い酸化マグネシウム粒子（球形でない）である。しかし焼成前の水酸化マグネシウム粒子が比較的大きな結晶であり、しかも鱗片状外形をしているため、焼結性は粉末水酸化マグネシウムの場合よりも改良されてはいるが未だ満足できるものではなく、また高温の焼成を必要とする。また凝集体内部だけでなく凝集体同士が結合するため、強度の粉碎を必要とし、このためほぼ球形の元の2次凝集体も同時に破壊されるとともに、結晶表面の欠陥部分が増加し、その結果耐水和性が不十分であるという問題を有している。

特開昭62-288114号公報および特開昭63-45117号公報は、酸化マグネシウム微粉末を有機シリケート化合物で表面処理後熱処理して酸化マグネシウムの粒子表面にシリカの被膜を形成させる方法を提案している。

この提案方法において酸化マグネシウム微粉末を有機シラン化合物で表面処理して酸化マグネシウムの粒子表面にシラン化合物の被膜を形成させる方法は、酸

- 化マグネシウム粒子の表面をシラン化合物で被膜するので、単位面積当たりの耐水和性は酸化マグネシウムそれ自体よりも改良された酸化マグネシウム粒子を提供する。しかし、表面積が大きいため耐水和性が不十分であり、また表面積が約 $5 \sim 20 \text{ m}^2/\text{g}$ と大きいことに起因して多くの有機シランが必要となるので、
- 5 経済的でないことは勿論、酸化マグネシウム粒子の優れた熱伝導性を低下させるという問題点を有していた。

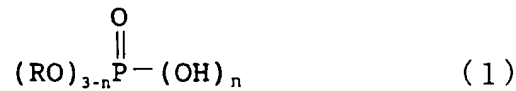
- 特開平 6-171928 号公報は上記従来の技術が有していた課題を解決し、流動性が高く作業性に優れるとともに、十分な熱伝導性改良に必要な樹脂への高充填を可能ならしめる 2 次粒子径と高密度を有し、かつ高耐水和性の酸化マグネシウムを従来の方法よりも、より低温焼成で製造する方法を提供している。さら
- 10 には上記高耐水和性酸化マグネシウム粒子を有機シラン処理することにより、一層優れた耐水和性を有すると共に、エポキシ樹脂、ポリエステル樹脂、ポリオレフィン樹脂、シリコンゴム等への高充填が可能であり、また酸化マグネシウム粒子と樹脂との親和性が増し、樹脂本来の機械的強度、電気的性質を低下させず
- 15 に十分な熱伝導性を付与できる酸化マグネシウム粒子の製造方法を提供している。

発明が解決しようとする課題

- しかしながら、各用途とも高湿度および酸性物質との接触を余儀なくされる雰囲気、または条件下で使用されることが多々あり、未だ低耐酸性および低耐水和性という問題があった。
- 20 本発明の目的は、これらの問題点が改良された酸化マグネシウム粒子を提供することにある。
- 本発明の他の目的は、十分な熱伝導性を有しかつ機械的強度の低下が少なく、電子材料として優れた性質を有する成形品を与える樹脂組成物を提供することにある。
- 25 本発明のさらに他の目的は、酸化マグネシウム粒子の高充填組成であっても、高湿度および酸性物質との接触する雰囲気下において、十分満足すべき性質の成形品を与える樹脂組成物を提供することにある。

課題を解決するための手段

本発明者の研究によれば、本発明の目的は、下記式（１）



- 5 （式中、nは1または2、RはC₄～C₃₀のアルキル基またはC₄～C₃₀のアルケニル基を示す、）

で表される酸性リン酸エステルで表面処理された高耐酸性および高耐水和性の酸化マグネシウム粒子によって達成される。

- また本発明の他の目的は、（A）合成樹脂100重量部および（B）前記式（１）
10 で表される酸性リン酸エステルで表面処理された酸化マグネシウム粒子50～1,000重量部より実質的になる樹脂組成物によって達成される。

以下本発明についてさらに詳細に説明する。

- 本発明において、酸化マグネシウム粒子は、レーザー光回折散乱法により測定
された平均二次粒子径が0.1～130μm、好ましくは0.5～50μmであ
15 り、またBET法により測定された比表面積が0.1～5m²/g、好ましくは0.1～3m²/gであるのが有利である。

- 酸化マグネシウム粒子は種々の方法で製造されたものでもよい。例えば特開平
6-171928号公報に記載の方法、すなわち、高分散性水酸化マグネシウム
を所定の温度で焼成し、ついで該焼成物の結晶を実質的に破壊しないように所定
20 粒径に粉碎分級する方法により得られたものが使用できる。この方法によれば、
高流動性、高充填性かつ高耐水和性を有する酸化マグネシウム粒子が得られる。
この酸化マグネシウム粒子は高分散性水酸化マグネシウムスラリーを、噴霧乾燥
などにより造粒乾燥し、所定の温度で好ましくは約1,100～1,600℃の
温度で焼成することにより得られる球状もしくはたまご状の形状を有する酸化マ
25 グネシウム粒子であって、本発明の樹脂組成物のために好ましい。

本発明の酸化マグネシウム粒子は、その表面と前記式（１）で表される酸性リン酸エステル（以下“表面処理剤”という）で表面処理されたものである。前記式（１）においてRはC₄～C₃₀のアルキル基またはC₄～C₃₀のアルケニル基で

あり、これらアルキル基またはアルケニル基は直鎖でもよくまた分岐していてもよい。好ましいRは、 $C_8 \sim C_{20}$ のアルキル基である。またnは1または2であり、このことはリン酸エステルはモノエステル型もしくはジエステル型いずれでもよいことを意味する。またモノエステル型とジエステル型の混合物であってもよい。リン酸エステルの例としてはブチルアシッドフォスフェイト、2-エチルヘキシルアシッドフォスフェイト、ラウリルアシッドフォスフェイト、トリデシルアシッドフォスフェイト、ステアリルアシッドフォスフェイト、ジ-2-エチルヘキシルフォスフェイト、オレイルアシッドフォスフェイト等が挙げられる。これらのうち、ステアリルアシッドフォスフェイトが最も好ましい。

- 10 酸化マグネシウム粒子を表面処理したときの表面処理剤の酸化マグネシウム粒子に対する付着量は0.1～10重量%、好ましくは、0.5～7重量%である。表面処理剤の付着量が、上記範囲より少ない場合には耐水、耐酸性の改善効果が不十分であり、また上記範囲より多い場合には耐水、耐酸性の改善効果をさらに向上させるものではなく、逆に該酸化マグネシウム粒子を配合した合成樹脂組成物から得られた成形品の引張強度、アイゾット衝撃強度等の機械的強度等を低下させる可能性がある。

- 20 表面処理剤による酸化マグネシウム粒子の表面処理方法は酸化マグネシウム粒子と表面処理剤を直接加熱する方法；有機溶剤に溶解させた表面処理剤を、酸化マグネシウム粒子に直接噴霧または混合処理後、有機溶剤を揮発除去する方法；有機溶剤に懸濁させた酸化マグネシウムスラリーに有機溶剤に溶解した表面処理剤を加え、混合処理後、有機溶剤を分離、揮発除去する方法等を用いることができる。これら方法により表面処理された酸化マグネシウム粒子は耐酸性および耐水和性が優れているだけでなく高流動性および高充填性をも有している。

- 25 前記した酸性リン酸エステルで表面処理された酸化マグネシウム粒子は、耐酸性および耐水和性が著しく優れているので、この粒子を合成樹脂に配合することによって、その利点を顕著に発現することができる。合成樹脂としては、従来酸化マグネシウム粒子を配合して高熱伝導性材料あるいは電気絶縁材料などに使用されているものが有利に利用できる。合成樹脂の例としては、例えばエポキシ樹

脂、シリコーン樹脂、フェノール樹脂、ジアリルフタレート樹脂、ポリイミド樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂、アクリルゴム、ブチルゴム、エチレンプロピレンゴム、エチレン酢酸ビニル共重合体、エチレンアクリル酸エステル共重合体またはフッ素樹脂等が挙げられる。これらのうち、エポキシ樹脂またはシリ

5 コーン樹脂が好ましく、ことにエポキシ樹脂が本発明の樹脂組成物に適している。

エポキシ樹脂の具体例としては、例えば4, 4'-ビス(2, 3-エポキシプロポキシ)ビフェニル、4, 4'-ビス(2, 3-エポキシプロポキシ)3, 3'5, 5'-テトラメチルビフェニル、4, 4'-ビス(2, 3-エポキシプロポキシ)-3, 3'5, 5'-テトラエチルビフェニル、4, 4'-ビス(2, 3-エポキシプロポキシ)-3, 3'5, 5'-テトラメチル-2-クロロビフェニルなど、ビフェニル骨格を有するビフェニル型エポキシ樹脂；1, 5-ジ(2, 3-エポキシプロポキシ)ナフタレン、1, 6-ジ(2, 3-エポキシプロポキシ)ナフタレンなどのナフタレン型エポキシ樹脂；4, 4'-ビス(2, 3-エポキシプロポキシ)スチルベン、4, 4'-ビス(2, 3-エポキシプロポキシ)-3, 3'5, 5'-テトラメチルスチルベンなどのスチルベン型エポキシ樹脂；

10 クレゾールノボラック型エポキシ樹脂；フェノールノボラック型エポキシ樹脂；ビスフェノールA骨格含有ノボラック型エポキシ樹脂などのノボラック型エポキシ樹脂；フェノールアラルキル型エポキシ樹脂；ナフトールアラルキル型エポキシ樹脂などのアリールアラルキル型エポキシ樹脂；ジシクロペンタジエン骨格含有エポキシ樹脂、トリス(2, 3-エポキシプロポキシ)フェニルメタンなどの多官能エポキシ樹脂などが挙げられる。これらの中で、ビフェニル型エポキシ樹脂、ナフタレン型エポキシ樹脂、スチルベン型エポキシ樹脂等の2官能エポキシ樹脂が特に好ましく用いられる。

15

20

本発明の樹脂組成物において、(A) 合成樹脂100重量部に対して(B) 前記

25 酸化マグネシウム粒子は50～1,000重量部、好ましくは60～500重量部、より好ましくは70～400重量部の割合で配合される。合成樹脂と酸化マグネシウム粒子との混合は、充填剤と樹脂との混練において通常知られた手段が採用される。

- 本発明によれば、酸化マグネシウム粒子を樹脂中に高充填することができ、また得られた組成物は流動性も優れているので成形加工性に優れている。また樹脂組成物から形成された成形物は、耐酸性および耐水和性が良好であり、酸化マグネシウムを高充填した成形品は高い熱伝導性を有しているので、電子部品もしくは電気部品の材料として有利に利用できる。

以下実施例を挙げ本発明を詳述する。

実施例

実施例 1

- 平均 2 次粒子径 $0.80\ \mu\text{m}$ 、BET 法比表面積 $6.3\ \text{m}^2/\text{g}$ である水酸化マグネシウムを、 $1,300^\circ\text{C}$ で焼成し酸化マグネシウムを得た。この酸化マグネシウムを粉碎分級した。得られた酸化マグネシウム粒子はレーザー光回折散乱法で測定した平均 2 次粒子径が約 $2\ \mu\text{m}$ 、最大粒子径 $16\ \mu\text{m}$ 、BET 法比表面積 $1.6\ \text{m}^2/\text{g}$ であり、走査型電子顕微鏡で観察すると、ほぼ球状の酸化マグネシウム粒子であった。

- 得られた酸化マグネシウム粒子 $100\ \text{kg}$ を三井三池製作所（株）製ヘンシェルミキサーに投入し、攪拌下にステアリルアシッドフォスフェイト $1\ \text{kg}$ を 60°C エタノール $20\ \text{リットル}$ に溶解した液を徐々に加え、5 分間攪拌した後、 80°C 以上に加熱し溶媒のエタノールを除去した。

- 次に、東亜電波工業（株）製自動スタット滴定装置 AUT-21 を用いて、耐酸性試験を行った。以下にその内容を示す。

ステアリルアシッドフォスフェイト処理酸化マグネシウム粒子 $0.5\ \text{g}$ をエタノール：水 = 1：1 の混合溶液 $50\ \text{cc}$ に懸濁し、攪拌下に $0.1\ \text{N}$ -硝酸を滴下することにより pH を 4.0 に維持しながら一定時間後の $0.1\ \text{N}$ -硝酸の消費量を測定した。その結果を表 1 に示す。

- 耐水和性試験は、ステアリルアシッドフォスフェイト処理酸化マグネシウムを 2.5 倍（重量比）の水と混合し、 105°C で 2.5 時間乾燥した後の重量増加％を測定した。その結果を表 2 に示す。

比較例 1

実施例 1 のステアリルアシッドフォスフェイト処理前の酸化マグネシウム粒子を用いて実施例 1 と同様の耐酸性試験および耐水和性試験を行った。

比較例 2

- 5 実施例 1 のステアリルアシッドフォスフェイトの代わりにビニルトリエトキシシランを用いて実施例 1 と同様の表面処理および耐酸性試験および耐水和性試験を行った。

比較例 3

- 比較例 2 のビニルトリエトキシシラン処理酸化マグネシウム粒子を 800℃で 1 時間焼成し、実施例 1 と同様の耐酸性試験および耐水和性試験を行った。
- 10 実施例 1 および比較例 1、2、3 の結果を表 1 および表 2 に示す。

表 1

	0. 1 N-硝酸消費量 (c c)		
	1 分	5 分	10 分
実施例 1	0. 152	0. 248	0. 318
比較例 1	3. 989	10 以上	—
比較例 2	3. 319	10 以上	—
比較例 3	0. 298	1. 477	9. 250

15

表 2

	重量増加%
実施例 1	0. 29
比較例 1	9. 50
比較例 2	2. 18
比較例 3	1. 81

実施例 2 および比較例 4～6

- 20 実施例 1 および比較例 1～2 で得られたそれぞれの酸化マグネシウム粒子を下記配合条件となる割合でエポキシ樹脂に配合し、得られた組成物を真空ポンプで引きながら攪拌し、混練した。次いでステンレスバット (8 cm×12 cm×3

cm) に流し込み、前硬化 (110℃、2時間) させ、さらに後硬化 (150℃、3時間) させた。得られた成形物の熱伝導率および吸水率を測定した。その結果を表3に示す。

なお、酸化マグネシウム粒子を配合しない場合を比較例4として示した。

5 吸水率および熱伝導率の測定は以下の方法で行った。

1) 吸水率

恒温恒湿槽 (アドバンテック東洋AGX-326) を用い85℃、85%RHの条件で重量変化を測定した。

2) 熱伝導率

10 京都電子工業 (株) 製のQTM迅速熱伝導率計を用いて、プローブ法にて測定した。

配合条件;

	エポキシ樹脂 (エピコート828、油化シエル製)	100部
	硬化剤 (リカシッド MH-700、新日本理化製)	80部
15	硬化促進剤 (BDMA、広栄化学製)	1部
	酸化マグネシウム粒子	300部

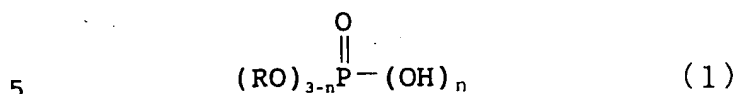
なお使用されたマグネシウム粒子は、実施例2では実施例1の粒子、比較例5では比較例1の粒子、比較例6では比較例2の粒子であった。

表 3

	実施例2	比較例4	比較例5	比較例6
エポキシ樹脂	100	100	100	100
硬化剤	80	80	80	80
硬化促進剤	1	1	1	1
酸化マグネシウム粒子	300	—	300	300
表面処理剤	ステアリルアジド 脂肪酸	—	—	ビニルトリ キシン
熱伝導率 (W/m·k)	0.704	0.181	0.709	0.693
吸水率 (%)	0.37	0.65	0.45	0.40

請求の範囲

1. 下記式 (1)



(式中、nは1または2、RはC₄～C₃₀のアルキル基またはC₄～C₃₀のアルケニル基を示す、)

で表される酸性リン酸エステルで表面処理された高耐酸性および高耐水和性の酸化マグネシウム粒子。

10

2. 該酸化マグネシウム粒子は0.1～130 μmの平均2次粒子径を有する請求項1記載の酸化マグネシウム粒子。

15

3. 該酸化マグネシウム粒子は、0.1～5 m²/gのBET法比表面積を有する請求項1記載の酸化マグネシウム粒子。

4. 該酸化マグネシウム粒子は、球状もしくはたまご状の粒形を有する請求項1記載の酸化マグネシウム粒子。

20

5. 該酸性リン酸エステルは、前記式(1)においてRがC₈～C₂₀のアルキル基の化合物である請求項1記載の酸化マグネシウム粒子。

6. 該酸化マグネシウム粒子は、前記式(1)で表される酸性リン酸エステルの合計量が0.1～10重量%である請求項1記載の酸化マグネシウム粒子。

25

7. (A) 合成樹脂100重量部および

(B) 請求項1記載の酸化マグネシウム粒子50～1,000重量部、

より実質的になる樹脂組成物。

8. (A) 合成樹脂 100 重量部および

(B) 請求項 1 記載の酸化マグネシウム粒子 70～400 重量部、
より実質的になる請求項 7 記載の樹脂組成物。

5

9. 該合成樹脂が、エポキシ樹脂、シリコーン樹脂、フェノール樹脂、ジアリルフタレート樹脂、ポリイミド樹脂、ポリフェニレンサルファイド樹脂、アクリルゴム、ブチルゴム、エチレンプロピレングム、エチレン酢酸ビニル共重合体、エチレンアクリル酸エステル共重合体またはフッ素樹脂である請求項 7 記載の樹脂

10 組成物。

10. 該合成樹脂が、エポキシ樹脂である請求項 7 記載の樹脂組成物。

11. 請求項 7 記載の樹脂組成物より形成された成形品。

15

12. 請求項 7 記載の樹脂組成物より形成された電子材料封止剤。

13. 請求項 7 記載の樹脂組成物より形成された電気絶縁材料。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05147

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ C09C1/02, C09C3/08, C01F5/02, C08K9/04, C08L101/00,
H01B3/00, H01B3/30, H01L23/29

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ C09C1/02, C09C3/08, C01F5/02, C08K9/04, C08L101/00,
H01B3/00, H01B3/30, H01L23/29

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP, 59-170131, A (Daihachi Kagaku Kogyosho K.K.), 26 September, 1984 (26.09.84), Claims; page 2, lower right column; page 3, upper left column (Family: none)	1,5-8,11-13 2-4,9,10
X Y	JP, 8-169991, A (Furukawa Electric Co., Ltd.), 02 July, 1996 (02.07.96), Par. Nos. [0013], [0020] (Family: none)	1,5-9,11,13 2-4,10,12
Y	JP, 63-265960, A (Asahi Glass Co., Ltd.), 02 November, 1988 (02.11.88), Claims (Family: none)	1-13
Y	JP, 64-33157, A (Sanyo Chemical Industries, Ltd.), 03 February, 1989 (03.02.89), Claims; page 2, lower right column; page 3, upper left column (Family: none)	1-13
Y	JP, 6-171928, A (Kyowa Chem. Ind. Co., Ltd.), 21 June, 1994 (21.06.94), Par. Nos. [0001], [0014] (Family: none)	1-13

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	understand the principle or theory underlying the invention
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	"&" document member of the same patent family
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search
27 September, 2000 (27.09.00)

Date of mailing of the international search report
10 October, 2000 (10.10.00)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/05147

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP, 5-63116, A (Toshiba Corporation), 12 March, 1993 (12.03.93), Claims; Par. No. [0008] (Family: none)	1-13

国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/05147

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ C09C1/02, C09C3/08, C01F5/02, C08K9/04, C08L101/00,
H01B3/00, H01B3/30, H01L23/29

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷ C09C1/02, C09C3/08, C01F5/02, C08K9/04, C08L101/00,
H01B3/00, H01B3/30, H01L23/29

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用了電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X Y	JP, 59-170131, A (株式会社大八化学工業所) 26.9月. 1984 (26.09.84) 特許請求の範囲、第2頁右下欄、第3頁左上欄 (ファミリーなし)	1, 5-8, 11-13 2-4, 9, 10
X Y	JP, 8-169991, A (古河電機工業株式会社) 2.7月. 1996 (02.07.96) 【0013】、【0020】 (ファミリーなし)	1, 5-9, 11, 13 2-4, 10, 12
Y	JP, 63-265960, A (旭硝子株式会社) 2.11月. 1988 (02.11.88) 特許請求の範囲 (ファミリーなし)	1-13

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日
27.09.00国際調査報告の発送日
10.10.00

国際調査機関の名称及びあて先
 日本国特許庁 (ISA/JP)
 郵便番号 100-8915
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)
 松本 直子

4V 9546

電話番号 03-3581-1101 内線 3483

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP, 64-33157, A(三洋化成工業株式会社) 3. 2月. 1989(03. 02. 89) 特許請求の範囲、第2頁右下欄、第3頁左上欄 (ファミリーなし)	1-13
Y	JP, 6-171928, A(協和化学工業株式会社) 21. 6月. 1994(21. 06. 94) 【0001】 , 【0014】 (ファミリーなし)	1-13
Y	JP, 5-63116, A(株式会社東芝) 12. 3月. 1993(12. 03. 93) 特許請求の範囲、【0008】 (ファミリーなし)	1-13